

2001 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

U₃Si/Al 사용후핵연료에 대한 네오디뮴 동위원소와 연소도변수 사이의 상관관계

Some Correlations between Neodymium Isotopes and Burnup Parameters for U₃Si/Al Spent Fuel

김정석, 전영신, 한선호, 조기수, 김원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

하나로원자로부터의 U₃Si/Al 사용후핵연료에 대한 연소도와 Nd 동위원소와의 상관관계를 실험적 방법으로 연구하였다. 사용후핵연료에 대한 총연소도는 Nd-148 방법으로 측정하였다. 사용후핵연료시료 중의 U, Pu 및 Nd 농도와 각각의 동위원소조성을 사용후핵연료시료로부터 화학적 분리 후 ²³³U, ²⁴²Pu 및 ¹⁵⁰Nd을 스파이크로 사용한 동위원소희석 질량분석법으로 정량하였다. 측정된 연소도, U과 Pu 동위원소 조성 및 Pu/U 비와 Nd 동위원소와의 상관관계를 나타내 보았다. 또한 측정된 U, Pu 및 Nd 동위원소 조성사이의 상관관계를 나타내 보았다. U₃Si/Al 사용후핵연료에 대한 Nd 동위원소 상관관계를 PWR 사용후핵연료에 대하여 측정된 결과와 비교해 보았다.

Abstract

The correlation of isotope composition of neodymium with the burnup in the spent U₃Si/Al fuel from Hanaro reactor has been investigated experimentally. The total burnup was determined by Nd-148 method. The contents of the U, Pu and Nd elements and their isotope compositions, after their separation from the spent fuel samples were determined by isotope

dilution mass spectrometric method using ^{233}U , ^{242}Pu and ^{150}Nd as spikes. The burnup values, U and Pu isotope compositions, and Pu/U ratios determined were expressed by the correlation with neodymium isotopes. The correlations between neodymium isotopes and burnup parameters in the spent $\text{U}_3\text{Si}/\text{Al}$ fuel were compared with those in PWR uranium dioxide fuel.

1. 서론

사용후핵연료 분석결과의 검증 및 신뢰도 확인을 위하여 핵연료중의 무거운 원소와 핵분열생성물의 농도 및 동위원소비와 연소도를 포함한 핵연료변수 사이의 상관관계에 대한 연구가 많이 이루어 졌다. 이러한 상관관계는 원자로 핵연료의 건진성 확인, 연소도와 Pu 생성에 대한 예측 및 safeguards 목적으로 연구되기도 하였다. 이러한 연구는 3가지 부류, 즉, 무거운 원소와 동위원소에 기초를 둔 상관관계, 안정한 핵분열생성물에 기초를 둔 상관관계 및 방사성 핵분열생성물에 기초를 둔 상관관계로 나누어 연구되었으며, 주로 이용되어 온 원소는 U, Pu, Kr, Xe, Cs, Nd, Eu, Ru 및 Zr등이다. 특히 Nd은 사용후핵연료중에 다량 함유되어 있고 매우 안정한 동위원소로서 연소도측정 지표원소로 가장 많이 이용하므로 연소도측정과 병행하여 동위원소상관관계 연구를 동시에 수행할 수 있다. 상관관계 연구에 주로 이용되는 연소도변수는 총연소도(total burnup)와 부분연소도(^{235}U burnup), ^{235}U 와 ^{239}Pu 감손(depletion), ^{239}Pu 생성(buildup), Pu/U 및 U/ U_0 (U_0 : 초기 우라늄농도), alpha value(α_5), source fission ratio(F_5/F_9) 등이며 이러한 연소도변수들과 무거운 원소 및 핵분열생성물 동위원소비 사이의 상관관계, 연소도변수들사이의 상관관계 및 동위원소비 사이의 상관관계가 연구되었다[1-7].

본 연구에서는 Hanaro 원자로부터의 $\text{U}_3\text{Si}/\text{Al}$ 사용후 분산핵연료에 대한 연소도 및 Nd 동위원소비 측정결과와 실험값을 토대로 계산한 연소도변수들을 이용하여 몇가지 방법으로 동위원소 상관관계를 연구하였다.

2. 실험

2.1. 사용후핵연료시료 용해

$\text{U}_3\text{Si}/\text{Al}$ 하나로사용후핵연료 연소도측정 및 동위원소상관관계 연구를 위하여 먼저 시료용해를

위한 산용해장치를 방사성구역의 hot cell (shielded line) 내에 설치하였다[8,9]. 사용후하나로핵연료 시료의 무게를 측정하고 핵연료용해장치의 용해용기에 넣은다음 4 M HCl 용액으로 1차 적가 용해하고 이어 10 M HNO₃ 용액으로 90°C로 24시간 용해하였다.

2.2. 연소도 및 동위원소비 측정

사용후핵연료 시료를 용해 및 희석한 후 용액 일정량을 glove box로 옮겨 화학적 전처리 및 음이온교환 분리를 하였다. 순수하게 분리한 U, Pu 및 Nd 각각의 용액을 농축한 열이온화질량분석기(PINIGAN 262)로 질량분석하였다. 질량분석 결과로부터 각각의 동위원소비를 측정하고 연소도를 계산하였다[10]. 총연소도는 Nd-148 방법으로 측정하였으며 핵연료시료중의 U, Pu 및 Nd 농도는 ²³³U, ²⁴²Pu 및 ¹⁵⁰Nd을 스파이크로 사용한 동위원소희석 질량분석법(IDMS)으로 정량하였다.

2.3. 연소도변수 측정

동위원소상관관계 연구를 위하여 각각의 동위원소비 측정결과를 이용하여 동위원소분율을 계산하고 몇가지 연소도변수들(F_T, F₅, D₅, α₅, Pu/U 등)을 산출하였다[11].

2.4. 동위원소상관관계 연구

동위원소비 및 분율의 측정결과, 동위원소희석 질량분석법에 의한 U, Pu 및 Nd 농도, 산출한 연소도변수들을 이용하여 몇가지 방법으로 동위원소상관관계를 연구하였다. U₃Si/Al 사용후핵연료에 대하여 측정한 이들 결과를 앞서 PWR 사용후핵연료에 대하여 측정한 결과들[7]과 비교해 보았다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Nd 동위원소조성 측정

Table 1에는 6종의 U₃Si/Al 사용후핵연료 시료로부터 분리한 Nd의 질량분석에 의한 동위원소 조성(atom %)을 나타내었다. 이 결과는 질량분석 측정값에 대해 질량편차 바이아스(mass discrimination bias)와 천연의 오염으로부터의 기여를 보정한 결과이다. 보정한 동위원소비를 이용

하여 동위원소희석 질량분석법으로 핵연료시료 중의 Nd를 정량할 수 있었다.

3.2. 동위원소 상관관계

3.3.1. 연소도 및 연소도변수와 동위원소조성 사이의 상관관계

연소도와 Nd 동위원소조성 사이의 상관관계는 연소도가 증가함에 따라 ^{143}Nd 과 ^{145}Nd 는 감소하고 다른 동위원소(^{144}Nd , ^{146}Nd , ^{148}Nd 및 ^{150}Nd)들은 증가하는 것을 확인 할 수 있었다. 이러한 감소와 증가 경향은 거의 직선성을 나타내었다. 여러가지 Nd 동위원소비를 이용하여 연소도 및 연소도변수들과 상관관계를 나타내 보았을 때 $^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$, $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$, $^{148}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ 및 $^{143}\text{Nd}/^{145+146}\text{Nd}$ 동위원소비가 비교적 좋은 직선성을 보여주었다. Fig. 1과 2에는 총연소도와 $^{143}\text{Nd}/^{145+146}\text{Nd}$ 및 $^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$ 동위원소비와의 상관관계를 나타내었다. 두 결과 모두 좋은 직선성을 보여주고 있으며 비교분석한 PWR 사용후핵연료에 대한 결과와 상당히 다른 특성을 나타내었다. Fig. 3에는 $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ 와 Pu/U 비와의 상관관계를 나타내었다. 동위원소비에 대한 Pu/U 비는 $\text{U}_3\text{Si}/\text{Al}$ 사용후핵연료의 경우 PWR 사용후핵연료보다 낮은 값을 보이나 비슷한 직선성을 나타내었다. 이들 결과를 기초로 측정된 연소도와 연소도변수 및 동위원소 측정결과를 검증할 수 있었으며 분석결과에 대한 예측(Pu 생성량 등)이 가능하였다.

3.3. 동위원소조성 사이의 상관관계

질량분석에 의하여 측정된 동위원소비 또는 동위원소 분율사이의 상관관계를 표시할 수 있었으며 질량분석의 정확도, 천연 및 기기로부터의 오염, 화학적 분리에 따른 동위원소들의 간섭등을 규명하는데 기초자료로 활용할 수 있었다. Fig. 4에는 $\text{atom \% } ^{235}\text{U}$ 와 $^{143}\text{Nd}/^{145+146}\text{Nd}$ 비사이의 상관관계를 나타내었다. 상관관계는 좋은 직선성을 보이나 PWR 사용후핵연료의 경우와 다른 기울기를 나타내었다. Fig. 5와 6에는 $\text{atom \% } ^{239}\text{Pu}$ 와 $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ 및 $\text{atom \% } ^{241}\text{Pu}$ 와 $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ 비사이의 상관관계를 나타내었다. 두 상관관계 모두 좋은 직선성을 보이며 PWR 사용후핵연료의 경우와 비슷한 기울기를 나타내었다.

4. 결론

1) 연소도측정에 필요한 Nd 동위원소는 본 연구의 화학적 분리와 질량분석과정으로 천연의 오염

및 동중원소들의 간섭없이 효과적으로 측정할 수 있음을 확인하였다.

- 2) 측정된 Nd 동위원소비를 이용하여 U_3Si/Al 사용후핵연료의 연소도 및 연소도변수와의 상관관계 연구를 성공적으로 수행할 수 있었다. 이들 연구결과를 이용하여 여러 핵연료 및 원자로변수와 관련된 핵공학적인 정보를 예측하고 사용후핵연료 분석결과에의 검증에 위한 기초자료로 활용할 수 있었다.
- 3) 차후 U_3Si/Al 사용후핵연료에 대한 상관관계 연구를 지속적으로 수행할 경우 원자로 및 핵연료 특성과 관련하여 보다 신뢰성있는 정보를 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

참고문헌

1. W. J. Maeck et al., "Isotope Correlation Studies Relative to High Enrichment Test Reactor Fuels", ICP-1156 (1978).
2. L. Koch et al., "Some Correlations between Isotopes of Xe, Kr, U, Pu and Burnup Parameters for Various Thermal and Fast Reactors", IAEA-SM-133/25, Analytical Methods in the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, 539 (1972).
3. L. Koch et al., "Improved Post-irradiation Analysis for Burnup and Heavy Isotope Content", IAEA-SM-149/2, Analytical Methods in the Nuclear Fuel Cycle, IAEA, 523 (1972).
4. L. Koch, "Post-irradiation Isotopic Analysis of Reactor Fuels", STI/PUB/337, Analytical Chemistry of Nuclear Fuel Reprocessing, IAEA, 111 (1972).
5. W. Smulk et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.*, **121**(2), 385 (1988).
6. C. Foggi and W. L. Zijp "Data Treatment for the Isotopic Correlation Technique", IAEA-SM-201/39, Safeguarding Nuclear Materials, Vol. II, IAEA, 405 (1976).
7. J. S. Kim, *J. Korean Nucl. Soc.*, **29**(4), 327 (1997).
8. J. S. Kim et al., "Chemical Separation for the Burnup Determination of the U_3Si/Al Spent Fuels", Proc. of the Korean Nucl. Soc. Autumn Meeting, Seoul Korea, Oct. 1999.
9. K. S. Choi., *Anal. Sci. & Tech.*, **13**(5), 584 (2000).
10. J. S. Kim et al., *J. Korean Nucl. Soc.*, **33**(4), 375 (2001).
11. J. S. Kim et al., "Analysis of the Spent U_3Si/Al Fuel Using the Heavy Atom Isotope

Correlation with Burnup” , Proc. of the Korean Nucl. Soc. Spring Meeting, Seoul Korea, May. 2001.

Table 1. Isotopic Composition of Nd Separated from U₃Si/Al Spent Fuel Samples

	Atom %					
	L1-M	L1-H	L1-L	L2-M	L2-H	L2-L
Nd-143	22.2854	26.4889	24.2556	22.1766	26.4021	24.0900
Nd-144	32.0715	28.4114	30.5667	32.5828	28.4240	30.7537
Nd-145	17.8631	18.7251	18.3928	17.9198	18.6529	18.3286
Nd-146	15.8404	14.9013	15.1933	15.5910	14.8857	15.2355
Nd-148	8.6969	8.2904	8.4228	8.5020	8.3042	8.4172
Nd-150	3.2426	3.1830	3.1687	3.2278	3.3311	3.1750

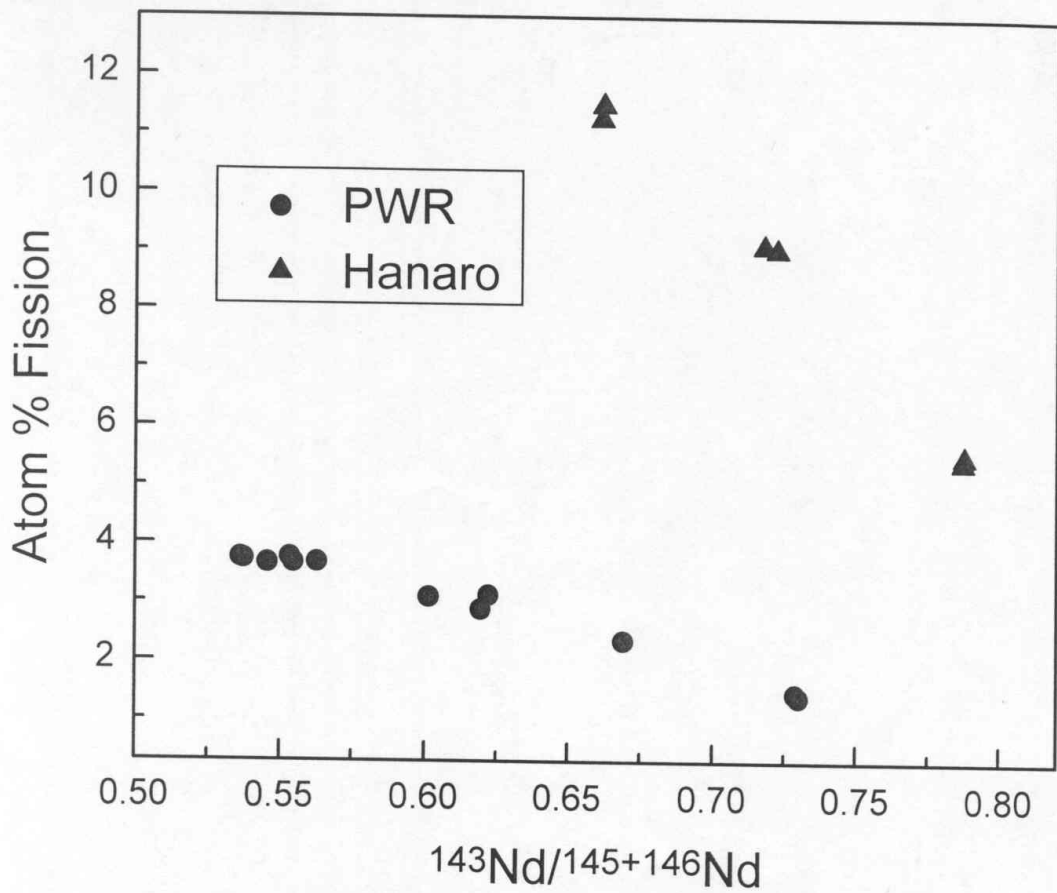


Fig. 1. Correlation between Total Burnup(Ft) and $^{143}\text{Nd}/^{145+146}\text{Nd}$ Atom Ratio.

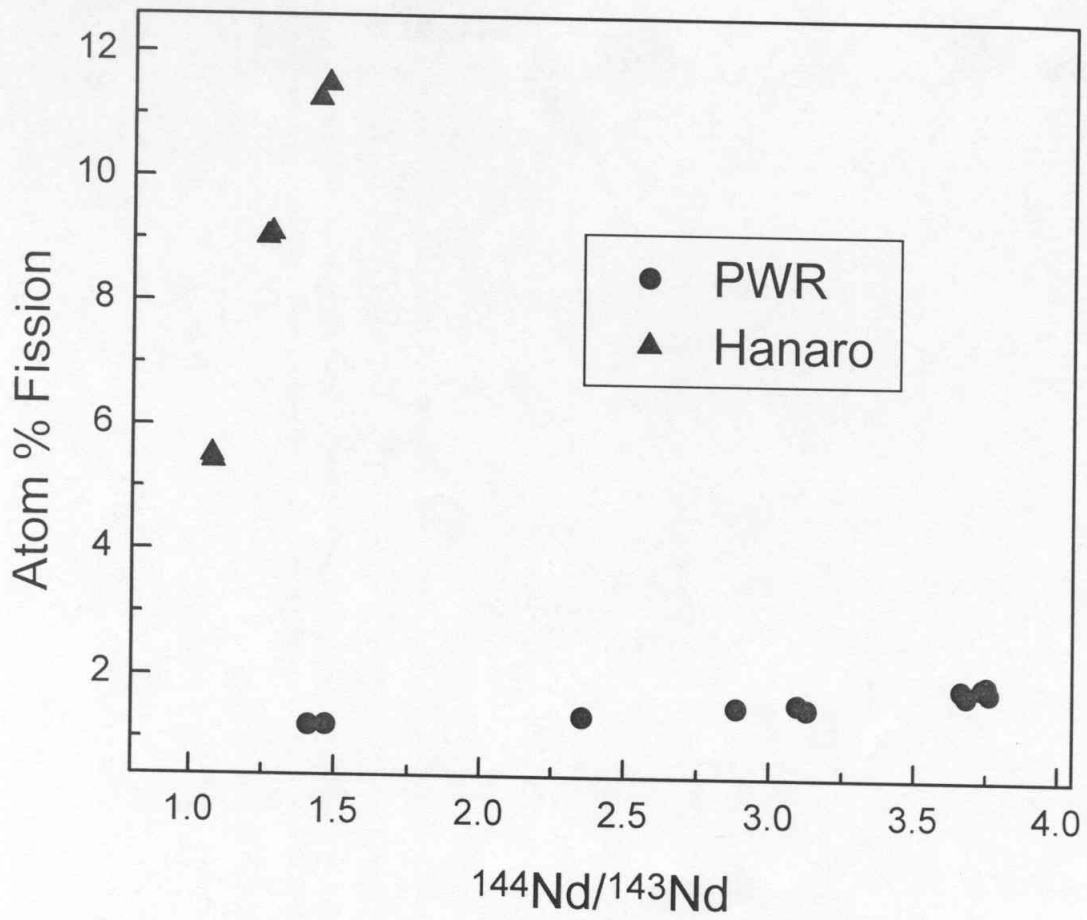


Fig. 2. Correlation between Total Burnup(Ft) and $^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$ Atom Ratio.

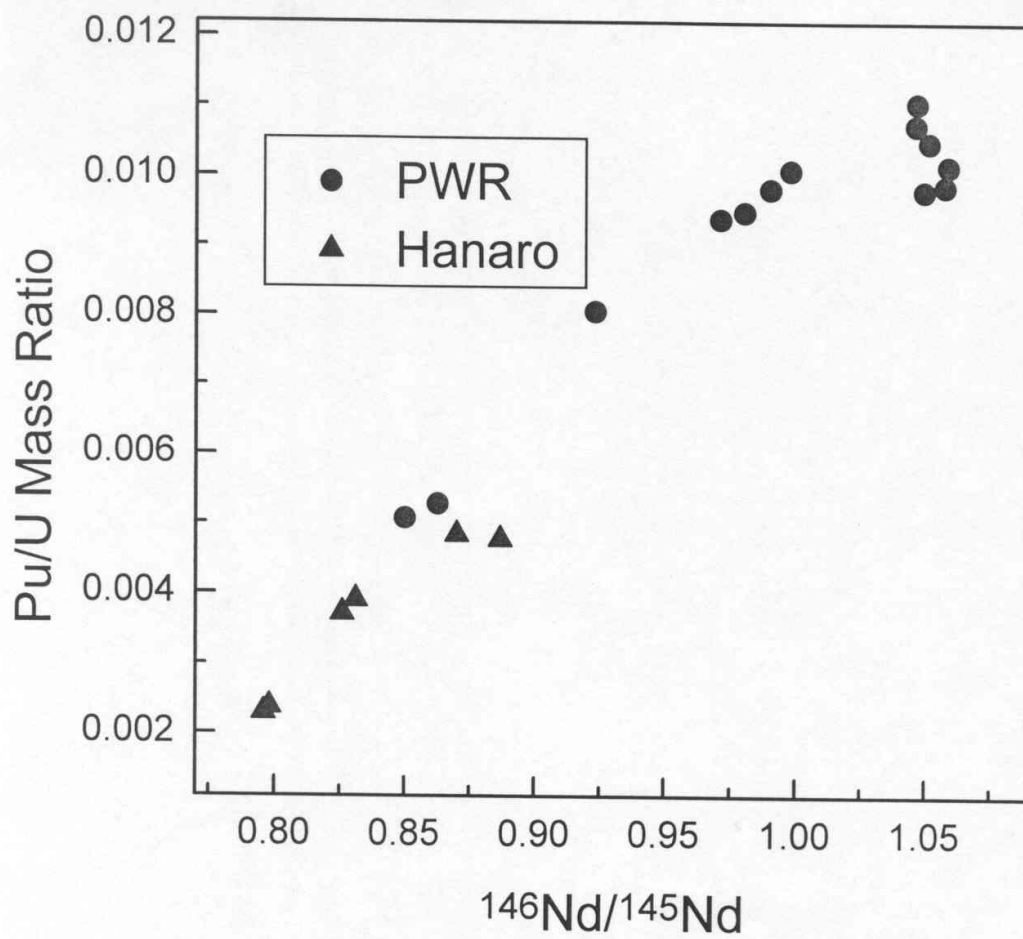


Fig.3. Correlation between Pu/U Mass Ratio and $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ Atom Ratio.

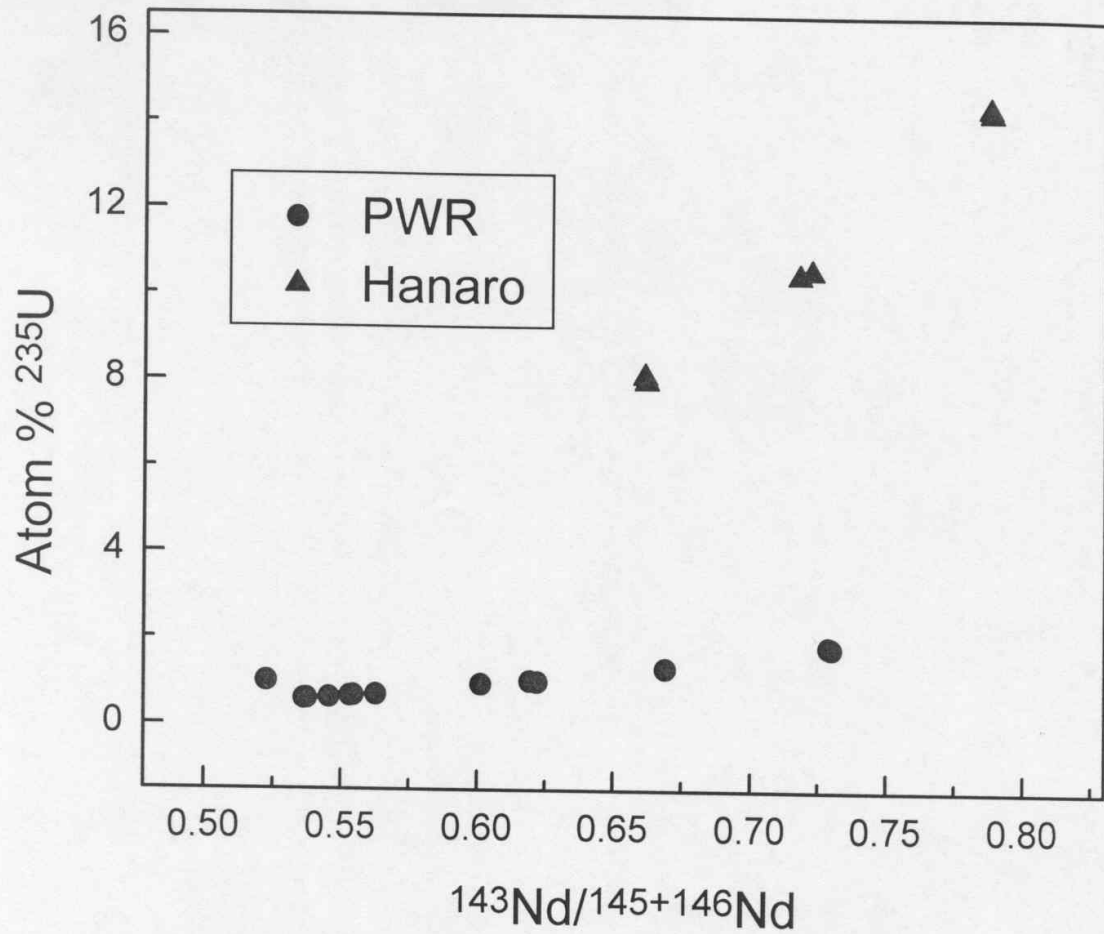


Fig. 4. Correlation between Atom % ²³⁵U and ¹⁴³Nd/¹⁴⁵⁺¹⁴⁶Nd Atom Ratio.

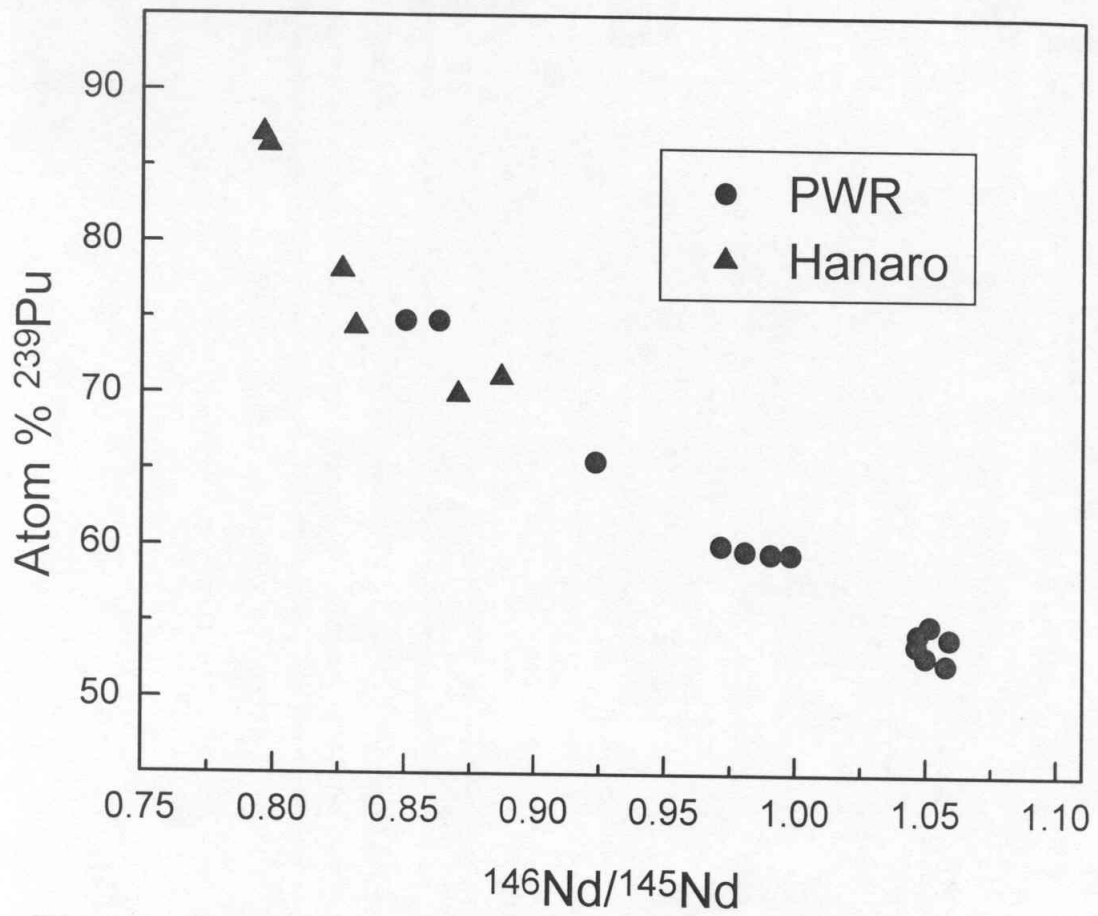


Fig. 5. Correlation between Atom % ²³⁹Pu and ¹⁴⁶Nd/¹⁴⁵Nd Atom Ratio.

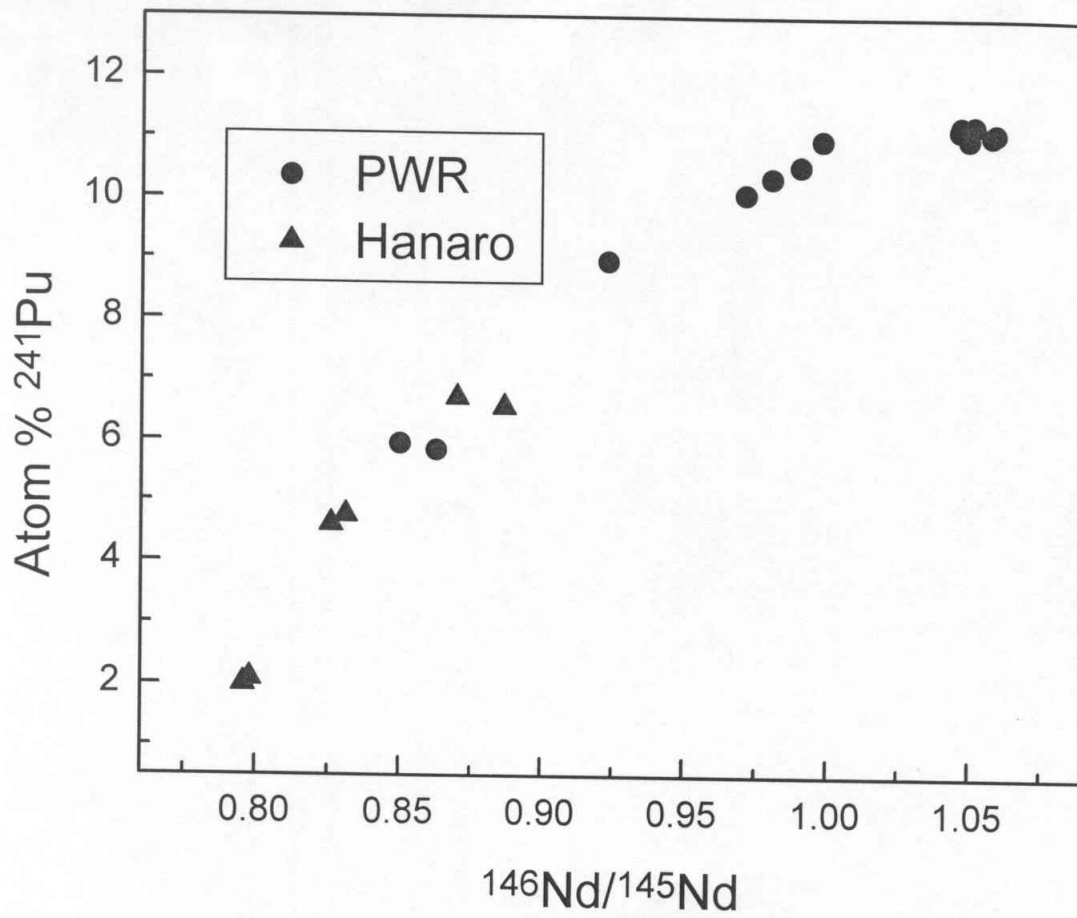


Fig. 6. Correlation between Atom % ²⁴¹Pu and ¹⁴⁶Nd/¹⁴⁵Nd Atom Ratio.